

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP2006/314470

International filing date: 21 July 2006 (21.07.2006)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2005-211140
Filing date: 21 July 2005 (21.07.2005)

Date of receipt at the International Bureau: 31 August 2006 (31.08.2006)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

09.08.2006

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 5 年 7 月 2 1 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 5 - 2 1 1 1 4 0

パリ条約による外国への出願
に用いる優先権の主張の基礎
となる出願の国コードと出願
番号
The country code and number
of your priority application,
to be used for filing abroad
under the Paris Convention, is

J P 2 0 0 5 - 2 1 1 1 4 0

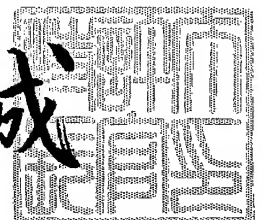
出 願 人
Applicant(s): 住友電気工業株式会社

2 0 0 6 年 8 月 2 日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

中 嶋

誠



【書類名】 特許願
【整理番号】 105I0200
【提出日】 平成17年 7月21日
【あて先】 特許庁長官 殿
【国際特許分類】 C01B 31/06
【発明者】
 【住所又は居所】 兵庫県伊丹市昆陽北一丁目 1 番 1 号 住友電気工業株式会社伊丹
 製作所内
 角谷 均
 【氏名】
【特許出願人】
 【識別番号】 000002130
 【氏名又は名称】 住友電気工業株式会社
【代理人】
 【識別番号】 100095485
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 久保田 千賀志
【代理人】
 【識別番号】 100094488
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 平石 利子
【代理人】
 【識別番号】 100072844
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 萩原 亮一
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 040512
 【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 0508215

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

非ダイヤモンド型炭素物質を含む原料組成物を、超高压高温下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換焼結された、実質的にダイヤモンドのみからなる多結晶体であって、当該多結晶体が、最大粒径が100 nm以下かつ平均粒径が50 nm以下の微粒ダイヤモンド結晶と、粒径が50～10000 nmの板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶との混合組織を有する高硬度ダイヤモンド多結晶体。

【請求項 2】

微粒ダイヤモンド結晶の最大粒径が50 nm以下かつ平均粒径が30 nm以下である請求項 1 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体。

【請求項 3】

粗粒ダイヤモンド結晶の粒径が50～1000 nmである請求項 1 又は 2 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体。

【請求項 4】

粗粒グラファイト型炭素物質と、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質とを含む原料組成物を、温度1500℃以上で、ダイヤモンドが熱力学的に安定である圧力条件下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換させると同時に焼結させる高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法であって、

前記粗粒グラファイト型炭素物質は平均粒径が50 nm以上、

前記微細グラファイト型炭素物質は平均粒径が50 nm未満、

前記非グラファイト型炭素物質は原料組成物中の10～95体積%を占める

ことを特徴とする高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 5】

非グラファイト型炭素物質が、グラファイト型炭素物質を不活性ガス中で機械的に粉碎された粒径50 nm以下の微細非グラファイト型炭素物質である請求項 4 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 6】

非グラファイト型炭素物質が、非晶質炭素物質である請求項 4 又は 5 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 7】

非グラファイト型炭素物質が、筒状もしくは管状の炭素物質である請求項 4～6 のいずれかに記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 8】

非グラファイト型炭素物質が、球状の炭素物質である請求項 4～7 のいずれかに記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 9】

ダイヤモンドと非グラファイト型炭素物質とを含む原料組成物を、温度1500℃以上で、ダイヤモンドが熱力学的に安定である圧力条件下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換させると同時に焼結させる高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法であって、

前記ダイヤモンドの平均粒径は50 nm以上、

前記非グラファイト型炭素物質は原料組成物中の10～95体積%を占める

ことを特徴とする高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 10】

非グラファイト型炭素物質が、グラファイト型炭素物質を不活性ガス中で機械的に粉碎された粒径50 nm以下の微細非グラファイト型炭素物質である請求項 9 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 11】

非グラファイト型炭素物質が、非晶質炭素物質である請求項 9 又は 10 に記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 1 2】

非グラファイト型炭素物質が、筒状もしくは管状の炭素物質である請求項 9 ～ 1 1 のいずれかに記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【請求項 1 3】

非グラファイト型炭素物質が、球状の炭素物質である請求項 9 ～ 1 2 のいずれかに記載の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】高硬度ダイヤモンド多結晶体およびその製造方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、ダイヤモンドおよびその製造方法に関するもので、特に、切削バイトや、ドレッサー、ダイスなどの工具や、掘削ビットなどに用いられる高硬度高強度で熱的特性に優れるダイヤモンド多結晶体とその製造方法に関するものである。

【背景技術】

【0002】

従来の切削バイトや、ドレッサー、ダイスなどの工具や、掘削ビットなどに使われるダイヤモンド多結晶体には、焼結助剤あるいは結合剤としてC o、N i、F eなどの鉄族金属や、S i Cなどのセラミックスが用いられている。また、焼結助剤として炭酸塩を用いたものも知られている（特許文献1及び特許文献2参照）。これらは、ダイヤモンドの粉末を焼結助剤や結合剤とともにダイヤモンドが熱力学的に安定な高压高温条件下（通常、圧力5～8 G P a、温度1300～2200℃）で焼結することにより得られる。一方、天然に産出するダイヤモンド多結晶体（カーボナードやバラス）も知られ、一部掘削ビットとして使用されているが、材質のバラツキが大きく、また産出量も少ないため、工業的にはあまり使用されていない。

【0003】

C oなどの鉄系金属触媒を焼結助剤としたダイヤモンド多結晶体には、用いた焼結助剤が多結晶中に含まれ、これがダイヤモンドの黒鉛化を促す触媒として作用するため耐熱性に劣る。すなわち、不活性ガス雰囲気中でも700℃程度でダイヤモンドが黒鉛化してしまう。

前記焼結助剤を多量に使用した場合には、この焼結助剤とダイヤモンドの熱膨張差のため、多結晶体内に微細なクラックが入りやすい。また、ダイヤモンドの粒子間にC oなどの金属が連続層として存在するため、多結晶体の硬度や強度などの機械的特性が低下する。

【0004】

前記ダイヤモンド多結晶体の耐熱性を上げるために、ダイヤモンドの粒界の金属を除去したのも知られており、この方法により耐熱温度は約1200℃と向上するが、多結晶体が多孔質となるため強度がさらに大幅に低下する。

【0005】

また、結合剤としてS i Cを用いたダイヤモンド多結晶体は、耐熱性には優れるが、ダイヤモンド粒同士は結合がないため、強度は低い。

さらに、焼結助剤として炭酸塩を用いたダイヤモンド多結晶体は、結合剤としてC oを用いた多結晶体に比べると耐熱性に優れるが、粒界に炭酸塩物質が存在するため、機械的特性は十分とはいえない。

【0006】

一方、黒鉛（グラファイト）やグラッシーカーボン、アモルファスカーボンなどの非ダイヤモンド炭素を超高压高温下で、触媒や溶媒なしに直接的にダイヤモンドに変換させることが可能である。非ダイヤモンド相からダイヤモンド相へ直接変換すると同時に焼結させることでダイヤモンド単相の多結晶体が得られる。

たとえば、非特許文献1や非特許文献2、非特許文献3には、グラファイトを出発物質として14～18 G P a、3000 K以上の超高压高温下の直接変換によりダイヤモンド多結晶体が得られることが開示されている。

【0007】

しかし、いずれもグラファイトなどの導電性のある非ダイヤモンド炭素に直接電流を流すことで加熱する直接通電加熱法によっているため、未変換グラファイトが残留することは避けられない。また、ダイヤモンド粒子径が不均一であり、また、部分的に焼結が不十分とりやすい。このため、硬度や強度などの機械的特性が不十分で、しかも欠片状の多結

晶体しか得られなかった。

また、14 GPa、3000 Kを越える超々高圧高温条件が必要で、製造コストが極めて高く、生産性にも乏しい。このため、切削工具やビットなどに適用できず、実用化にはいたっていない。

さらに、たとえば、特許文献3にはカーボンナノチューブを10 GPa以上、1600℃以上に加熱して、微細なダイヤモンドを合成する方法が記載されている。しかし、開示されている方法はカーボンナノチューブをダイヤモンドアンビルで加圧し、炭酸ガスレーザーで集光加熱しているため、切削工具等に適用できるサイズの均質なダイヤモンド多結晶体の製造は不可能である。

【0008】

そこで、本発明者らは、高純度グラファイトを出発物質として、12 GPa以上、2200℃以上の超高圧高温下で間接加熱による直接変換焼結により緻密で高純度なダイヤモンド多結晶体を得る方法を発明した（非特許文献4及び非特許文献5参照）。

しかし、この方法で得られるダイヤモンドは非常に高い硬度を有する場合があるが、その再現性が十分でなく、機械的特性が安定しないという問題があった。

【0009】

【特許文献1】特開平4-74766号公報

【特許文献2】特開平4-114966号公報

【特許文献3】特開2002-66302号公報

【非特許文献1】J. Chem. Phys., 38 (1963) 631-643 [F. P. Bundy]

【非特許文献2】Japan. J. Appl. Phys., 11 (1972) 578-590 [M. Wakatsuki, K. Ichinose, T. Aoki]

【非特許文献3】Nature 259 (1976) 38 [S. Naka, K. Horii, Y. Takeda, T. Hanawa]

【非特許文献4】New Diamond and Frontier Carbon Technology, 14 (2004) 313 [T. Irifune, H. Sumiya]

【非特許文献5】SEIテクニカルレビュー165 (2004) 68 [角谷、入船]

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

上記した非特許文献4や5のように、グラファイトを出発物質として12 GPa以上、2200℃以上の処理で得られるダイヤモンド多結晶体の硬度は、試料によって大きくバラつくが、中には、120 GPaを超える非常に高い硬さを示すものがある。

本発明者らは、この原因を調べるため、多結晶体の微細構造と機械的特性との関係を詳しく調査したところ、多結晶体は、層状構造と微細な均質構造の混在した複合組織を持つ場合があり、これらが適切な割合で分布しているものは、120 GPaを超える非常に高い硬度を示すが、微細均質構造のみからなる多結晶体では、硬さは70~100 GPa程度に低下してしまうことを確認した。この理由を追求した結果、本発明者らは、層状の構造部が塑性変形や微細なクラックの進展を有効に阻止する作用を有し、この作用によって、非常に強靱で高硬度な特性を示すことをも確認した。

しかも、層状構造と微細な均質構造の比率は、出発物質のグラファイトの状態、あるいは昇温時間や速度度圧力条件の微妙な違いによってバラつき、これが機械的特性の安定しない原因であることをも確認できた。

【0011】

そこで、本発明は、上記のような問題のない、非ダイヤモンド炭素をダイヤモンドに直接変換させた非常に硬くて強靱なダイヤモンド多結晶体と、このダイヤモンド多結晶体の製造方法を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者らは、上記課題を解決するため、研究を重ねた結果、超高压高温下で非ダイヤモンド炭素をダイヤモンドに直接変換させる方法において、比較的粗い板状グラファイトあるいは比較的粗いダイヤモンドに、非グラファイト型炭素物質もしくは低結晶性あるいは微粒のグラファイトを添加したものを出発物質としたところ、比較的マイルドな高压高温条件において、微粒のダイヤモンドのマトリックスの中に層状のもしくは比較的粗いダイヤモンド結晶が分散した組織のダイヤモンド多結晶体が得られ、この層状もしくは粗粒ダイヤモンドでの塑性変形、微細クラックの進展阻止効果により、非常に硬くて強靱なダイヤモンド多結晶体が極めて安定して得られることを見出した。

【0013】

すなわち、本発明の高硬度ダイヤモンド多結晶体は、

(1) 非ダイヤモンド型炭素物質を含む原料組成物を、超高压高温下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換焼結された、実質的にダイヤモンドのみからなる多結晶体であって、当該多結晶体が、最大粒径が100nm以下かつ平均粒径が50nm以下の微粒ダイヤモンド結晶と、粒径が50～10000nmの板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶との混合組織を有することを特徴とする。

このとき、(2) 微粒ダイヤモンド結晶の最大粒径が50nm以下かつ平均粒径が30nm以下であってもよく、(3) 粗粒ダイヤモンド結晶の粒径が50～1000nmであってもよい。

【0014】

また、本発明の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法は、

(4) 粗粒グラファイト型炭素物質と、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質とを含む原料組成物を、温度1500℃以上で、ダイヤモンドが熱力学的に安定である圧力条件下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換させると同時に焼結させる高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法であって、

前記粗粒グラファイト型炭素物質は平均粒径が50nm以上、

前記微細グラファイト型炭素物質は平均粒径が50nm未満、

前記非グラファイト型炭素物質は原料組成物中の10～95体積%を占める

ことを特徴とし、また

(5) ダイヤモンドと非グラファイト型炭素物質とを含む原料組成物を、温度1500℃以上で、ダイヤモンドが熱力学的に安定である圧力条件下で、焼結助剤及び触媒の添加なしに、直接的にダイヤモンドに変換させると同時に焼結させる高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法であって、

前記ダイヤモンドの平均粒径が50nm以上、

前記非グラファイト型炭素物質は原料組成物中の10～95体積%を占める

ことを特徴とする。

このとき、非グラファイト型炭素物質が、(6) グラファイト型炭素物質を不活性ガス中で機械的に粉碎された粒径50nm以下の微細非グラファイト型炭素物質であってもよく、(7) 非晶質炭素物質であってもよく、(8) 筒状もしくは管状の炭素物質であってもよく、(9) 球状の炭素物質であってもよい。

【発明の効果】

【0015】

本発明によれば、粒径50nm以下の微粒のダイヤモンドのマトリックス中に、粒径50nm以上の層状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶が分散した、非常に高硬度なダイヤモンド多結晶体を、安定してかつ低価格で得ることができる。

このダイヤモンド多結晶体は、十分な強度、硬度、耐熱性を有する緻密で均質なダイヤモンド単相の多結晶体であり、機械的特性や熱的安定性に非常に優れ、切削バイトや、ドレッサー、ダイスなどの工具や、掘削ビットなどの工業的利用に極めて有効な材料である。

【発明を実施するための最良の形態】**【0016】**

本発明は、非ダイヤモンド型炭素物質を含む原料組成物をダイヤモンドに変換焼結させたダイヤモンド多結晶体であり、前記原料組成物は、非ダイヤモンド型炭素物質のみからなるものでもよく、非ダイヤモンド型炭素物質とダイヤモンドからなるものでもよく、さらに他の物質を含有していてもよい。

【0017】

本発明で使用できる非ダイヤモンド型炭素物質としては、グラファイト型炭素物質でも、非グラファイト型炭素物質でも、グラファイト型炭素化合物と非グラファイト型炭素物質との原料組成物でもよい。

前記グラファイト型炭素物質としては、板状グラファイト型炭素物質、微細グラファイト型炭素物質などが挙げられる。

前記微細グラファイト型炭素物質は、板状グラファイト型炭素物質等のグラファイト型炭素物質を遊星ボールミル等で機械的に粒径50nm以下に粉碎することによって得ることができる。前記グラファイト型炭素物質を粉碎する際には、不活性ガス雰囲気中で行うことにより、粉碎後の微細な炭素物質の表面に、ダイヤモンドへの変換・焼結を阻害するガスや水分が吸着することを防ぐことができる。

【0018】

前記非グラファイト型炭素物質としては、例えば、グラッシーカーボン、アモルファスカーボン、フラーレン、カーボンナノチューブなどが挙げられる。

前記非グラファイト型炭素物質の結晶状態としては、特に制限されず、フラーレンもしくはカーボンナノチューブ等の結晶質炭素物質や、グラッシーカーボンもしくはアモルファスカーボン等の非晶質炭素物質が挙げられる。

前記非グラファイト型炭素物質の形状としては、特に限定されず、カーボンナノチューブ等の筒状もしくは管状の非グラファイト型炭素物質や、フラーレン等の球状の非グラファイト型炭素物質でもよい。

【0019】**<高硬度ダイヤモンド多結晶体>**

本発明の高硬度ダイヤモンド多結晶体は、非ダイヤモンド型炭素物質を含む原料組成物を、超高压高温下で焼結助剤や触媒の添加なしに直接的にダイヤモンドに変換焼結された、実質的にダイヤモンドのみからなる多結晶体であって、当該多結晶体が、最大粒径が100nm以下かつ平均粒径が50nm以下の微粒ダイヤモンド結晶と、粒径が50～10000nmの板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶との混合組織を有する高硬度ダイヤモンド多結晶体である。

本発明のダイヤモンド多結晶体は、前記板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶が有する塑性変形や微細クラックの進展阻止作用によって、塑性変形やクラックの進展が阻止されるため、非常に強靱で高い硬度特性を示し、試料による特性バラツキも大幅に小さくなる。

【0020】

前記粗粒ダイヤモンド結晶としては、当該結晶の粒径が50～1000nmであることが好ましい。

前記粗粒ダイヤモンド結晶が小さすぎると、前記の阻止作用が十分に発現せず、大きくなりすぎると、粗粒ダイヤモンド自体の塑性変形や劈開（粒内破壊）の影響が大きくなり、ダイヤモンド多結晶体の硬度や強度が低下する傾向がある。

【0021】**<高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造方法>**

本発明の高硬度ダイヤモンド多結晶体の製造法は、原料組成物をダイヤモンドに変換させると同時に焼結させる方法である。

（原料組成物）

平均粒径が50nm以上のグラファイト型炭素物質あるいはダイヤモンドと、非グラフ

ァイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質とを適当量混合して原料組成物とし、該原料組成物を出発物質として、ダイヤモンドが熱力学的に安定である圧力条件下で直接的にダイヤモンドに変換焼結させると、平均粒径が10～20 nm程度の非常に微細なダイヤモンドのマトリックスに、平均粒径が100～200 nm程度の比較的粗いダイヤモンドが分散した組織のダイヤモンド多結晶体が得られる。

【0022】

ここで、原料組成物中における粗粒グラファイト型炭素物質もしくはダイヤモンドと混合する、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質の添加量は、10～95体積%が好ましい。

前記原料組成物中における前記非グラファイト型炭素物質の添加量が10体積%より少ないと、層状もしくは粗粒のダイヤモンド同士が接触し、その界面で応力が集中して、ダイヤモンド多結晶体に割れや亀裂が発生しやすくなり、95体積%を超えると、層状もしくは粗粒のダイヤモンドによる塑性変形や微細クラックの進展阻止効果が十分でなくなる場合がある。

【0023】

粗粒グラファイト型炭素物質あるいはダイヤモンドと、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質との混合物を、MoやTaなどの金属カプセルに充填し、原料組成物とするのが好ましい。

粗粒グラファイト型炭素物質もしくはダイヤモンドと、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質との混合物を金属カプセルに充填する際において、微細グラファイト型炭素物質を用いる場合は、充填作業を高純度な不活性ガス雰囲気で行うことが好ましい。不活性ガス雰囲気で行うことによって、変換・焼結を阻害する吸着ガスや吸着水分の生成を抑制することができる。

【0024】

(ダイヤモンドへの変換)

上記原料組成物は、超高圧高温発生装置を用いて、温度1500℃以上で、かつダイヤモンドが熱力学的に安定な圧力環境下で所定時間保持されることによって、ダイヤモンドに変化され、同時に焼結されて、高硬度ダイヤモンド多結晶となる。

前記原料組成物中における粗粒グラファイト型炭素物質として、粒径50 nmの板状グラファイト等を用いる場合は、原料組成物を完全にダイヤモンドに変換させるために、2000℃以上の高温で処理することが好ましい。

【0025】

上記原料組成物をダイヤモンドに変換する過程における加熱方法としては、種々の方法を採用することができるが、ReもしくはLaCrO₃の高温耐熱ヒーターを用いた間接加熱が好ましい。これは、原料組成物への通電やレーザー照射による加熱方法では、原料組成物を一定時間、一定温度に保つことが難しく、未変換グラファイトが残りやすく、ダイヤモンド多結晶体においても未焼結部分が生じやすいためである。

【0026】

上記原料組成物をダイヤモンドに変換する過程におけるダイヤモンドが熱力学的に安定な圧力は、図1に示す領域における圧力を指し、この圧力は、同図に示すように、温度によって異なり一概には決められないが、本発明では、この課程を上記のように1500℃以上で行うため、この温度を考慮して、図1のハッチングで示す範囲から適宜選定することが好ましい。さらに、ダイヤモンド安定領域にあっても、圧力が低いと未変換部が残留しやすくなるため、平衡線(図1中の一点鎖線)よりやや高い圧力が好ましく、具体的には8.5 GPa以上が好ましい。なお、図1において、一点鎖線の上方がダイヤモンド安定領域であり、一点鎖線の下方がグラファイト安定領域である。

また、上記原料組成物をダイヤモンドに変換する過程における所定温度及び所定圧力の保持時間としては、特に限定されないが、例えば10～10000秒程度が好ましく挙げられる。

【0027】

こうして、微粒のダイヤモンドのマトリックスの中に層状のもしくは比較的粗いダイヤモンド結晶が分散した組織のダイヤモンド多結晶体が安定して得られる。この層状もしくは粗粒ダイヤモンドでの塑性変形や微細クラックの進展阻止効果により、本発明におけるダイヤモンド多結晶体の硬度は120 GPa以上と非常に高く、特性バラツキも少ない。したがって、本発明のダイヤモンド多結晶体は、切削バイトや、ドレッサー、ダイスなどの工具や、掘削ビットなどとして非常に有用である。

【実施例】**【0028】**

粒径0.05～10 μm 、純度99.95%以上の結晶性の良いグラファイト粉末もしくは、粒径0.05～3 μm の合成ダイヤモンド粉末に、グラファイトを超微細粉碎した粉末やグラシーカーボン粉末、フラーレン粉末、カーボンナノチューブ粉末の各種非グラファイト型炭素材料を添加し、これをMoカプセルに充填、密封して原料組成物を製造した。

得られた原料組成物をベルト型超高压発生装置を用いて、種々の圧力、温度条件で30分処理し、高硬度ダイヤモンド多結晶体を得た。

得られた高硬度ダイヤモンド多結晶体の生成相をX線回折により同定し、TEM観察により構成粒子の粒径を調べた。また、得られた高硬度ダイヤモンド多結晶体の表面を鏡面に研磨し、その研磨面の硬さをマイクロヌープ硬度計で測定した。

これらの測定結果を表1に示す。

なお、表1において、Grはグラファイト、Diaはダイヤモンドを示す。また、母材、添加材における大きさはそれぞれの粒径を示す。添加量は、原料組成物中の添加剤の添加量を示す。

【0029】

【表1】

	原料組成物			合成条件		生成物(ダイヤモンド多結晶体)		
	母材	添加材	添加量	圧力	温度	粗粒部粒径	微粒粒径	ヌーブ硬度
実施例1	1-3 μ mGr	35nmGr	50vol%	12GPa	2300°C	50-300nm(層状)	40nm	120GPa
実施例2	1-3 μ mGr	25nmGr	70vol%	12GPa	2300°C	50-300nm(層状)	30nm	130GPa
実施例3	1-3 μ mGr	10nmGr	30vol%	12GPa	2100°C	50-200nm(層状)	15nm	130GPa
実施例4	0.1-1 μ mDia	10nmGr	50vol%	9GPa	1900°C	100-1000nm	15nm	120GPa
実施例5	1-3 μ mGr	グラッシーカーボン	50vol%	9GPa	1900°C	50-200nm(層状)	10nm	120GPa
実施例6	1-3 μ mGr	フラーレン	50vol%	9GPa	1900°C	50-200nm(層状)	10nm	120GPa
実施例7	1-3 μ mGr	カーボンナノチューブ	50vol%	9GPa	1900°C	50-200nm(層状)	10nm	120GPa
実施例8	0.1-1 μ mDia	グラッシーカーボン	50vol%	9GPa	1900°C	100-1000nm	10nm	120GPa
実施例9	0.1-1 μ mDia	フラーレン	50vol%	9GPa	1900°C	100-1000nm	10nm	120GPa
実施例10	0.1-1 μ mDia	カーボンナノチューブ	50vol%	9GPa	1900°C	100-1000nm	10nm	120GPa
比較例1	1-3 μ mGr	なし	—	12GPa	2300°C	50-100nm(層状)	25nm	100-130GPa
比較例2	0.1-1 μ mDia	なし	—	12GPa	2300°C	100-1000nm	なし	70-90GPa
比較例3	グラッシーカーボン	なし	—	9GPa	1900°C	なし	10nm	95GPa
比較例4	フラーレン	なし	—	9GPa	1900°C	なし	10nm	80GPa

【0030】

上記の結果から、平均粒径50nm以上の粗粒グラファイト型炭素物質もしくはダイヤモンドに、非グラファイト型炭素物質もしくは微細グラファイト型炭素物質を10体積%

以上 9 5 体積 % 以下添加した混合物を金属カプセルに封入した原料組成物を超高圧高温環境下で、ダイヤモンドに直接変換焼結すると、平均粒径 5 0 n m 以下の微粒のダイヤモンドのマトリックスの中に、粒径 5 0 n m 以上の板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶が分散した組織のダイヤモンド多結晶体が安定して得られる。

得られた多結晶の硬度は、従来の C o バインダーの焼結体 (6 0 ~ 8 0 G P a) よりはるかに高く、従来のグラファイトを原料とした多結晶体に見られる硬度特性のバラツキもないことがわかる。

【産業上の利用可能性】

【 0 0 3 1 】

本発明における高硬度ダイヤモンド多結晶体は、十分な強度、硬度、耐熱性を有する緻密で均質なダイヤモンド単相の多結晶体であり、機械的特性や熱的安定性に非常に優れるため、切削バイト、ドレッサー、ダイスなどの工具、掘削ビットなどとして極めて有効な材料として利用することができる。

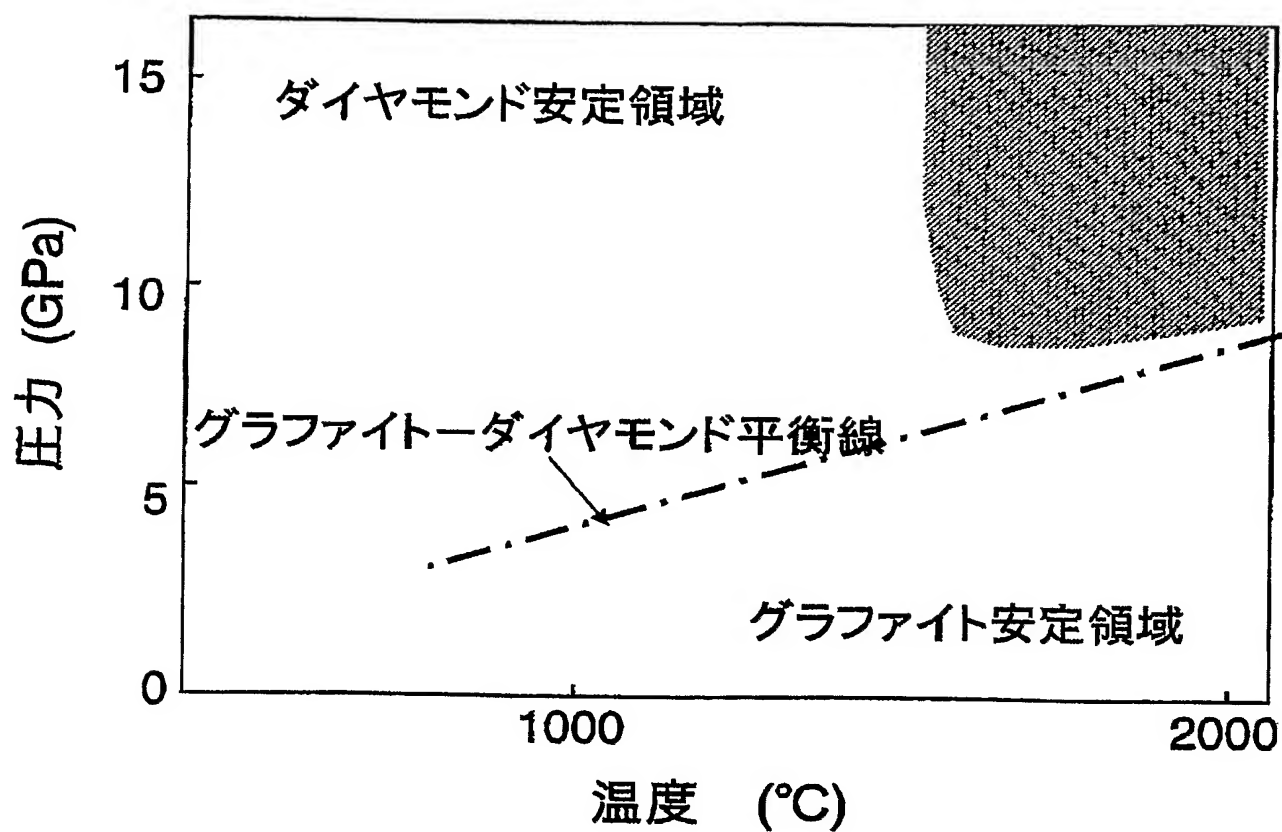
【図面の簡単な説明】

【 0 0 3 2 】

【図 1】ダイヤモンドが熱力学的に安定な領域を圧力と温度との関係で示す図である。

【書類名】 図面

【図 1】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 切削バイト等の工具や掘削ビットとして十分な強度、硬度、耐熱性を有する緻密で均質なダイヤモンド単相の多結晶体を、低価格で提供することを目的とする。

【解決手段】 非ダイヤモンド型炭素物質を含む原料組成物を、超高圧高温下で焼結助剤や触媒の添加なしに直接的にダイヤモンドに変換焼結された、実質的にダイヤモンドのみからなる多結晶体であって、当該多結晶体が、最大粒径が 1 0 0 n m 以下かつ平均粒径が 5 0 n m 以下の微粒ダイヤモンド結晶と、粒径が 5 0 n m 以上かつ 1 0 0 0 0 n m 以下の板状もしくは粒状の粗粒ダイヤモンド結晶との混合組織を有する高硬度ダイヤモンド多結晶体とする。

【選択図】 図 1

認定・付加情報

特許出願の番号	特願 2005-211140
受付番号	50501338398
書類名	特許願
担当官	関川 久男 6892
作成日	平成 17 年 10 月 28 日

< 認定情報・付加情報 >

【特許出願人】

【識別番号】	000002130
【住所又は居所】	大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号
【氏名又は名称】	住友電気工業株式会社

【代理人】

申請人

【識別番号】	100095485
【住所又は居所】	東京都港区西新橋一丁目 2 2 番 1 2 号 J C ビル 4 F

【氏名又は名称】	久保田 千賀志
----------	---------

【代理人】

【識別番号】	100094488
【住所又は居所】	東京都港区西新橋 1 丁目 1 8 番 1 5 号 厚川ビル 平石特許事務所

【氏名又は名称】	平石 利子
----------	-------

【代理人】

【識別番号】	100072844
【住所又は居所】	東京都港区西新橋 1 丁目 2 2 番 1 2 号 J C ビル 4 F

【氏名又は名称】	萩原 亮一
----------	-------

特願 2 0 0 5 - 2 1 1 1 4 0

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[0 0 0 0 0 2 1 3 0]

1. 変更年月日

1 9 9 0 年 8 月 2 9 日

[変更理由]

新規登録

住 所

大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号

氏 名

住友電気工業株式会社